

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 05-222488

(43)Date of publication of application : 31.08.1993

---

(51)Int.Cl. C22C 38/00  
C22C 33/02

---

(21)Application number : 04-028656

(71)Applicant : SANTOKU KINZOKU KOGYO KK

(22)Date of filing : 15.02.1992

(72)Inventor : YAMAMOTO KAZUHIKO  
MIYAKE YUICHI  
OKADA TSUTOMU

---

(54) ALLOY INGOT FOR PERMANENT MAGNET AND ITS MANUFACTURE

## (57)Abstract:

PURPOSE: To manufacture alloy ingot for permanent magnet having crystalline structure whose magnetic properties are excellent by executing uniform solidification of the rare earth elements-iron-boron alloy molten metal under the conditions of the specified cooling speed and of supercooling.

CONSTITUTION: Alloy ingot for permanent magnet is obtained by solidifying the rare earth elements-iron-boron alloy molten metal. It is preferable to set the composition so that the blending ratio of the rare earth elements:boron:iron may approximately be 25-40:0.5-2.0: the balance. In the solidification the alloy molten metal is solidified uniformly under the cooling condition of the cooling speed of 10-500° C/sec and of the supercooling of 10-500° C. The strip casting or the like is suitable for this operation, and it is preferable to set the thickness of alloy ingot to be approximately 0.05-15mm. This allows the crystalline structure where the alloy whose crystalline grain size is 0.1-50µm in the minor axis and 0.1-100µm in the major axis are contained more than 90vol.%, and the preferably, α-Fe and/or λ-Fe which is the peritectic nucleus and whose grain size is below 10µm are dispersively refined in the principal phase crystalline grain to be formed.

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平5-222488

(43)公開日 平成5年(1993)8月31日

|                          |         |         |     |        |
|--------------------------|---------|---------|-----|--------|
| (51)Int.Cl. <sup>5</sup> | 識別記号    | 庁内整理番号  | F I | 技術表示箇所 |
| C 2 2 C 38/00            | 3 0 3 D | 7325-4K |     |        |
| 33/02                    | J       |         |     |        |

審査請求 未請求 請求項の数3(全 4 頁)

|          |                 |         |   |
|----------|-----------------|---------|---|
| (21)出願番号 | 特願平4-28656      | (71)出願人 | 000176660<br>三徳金属工業株式会社<br>兵庫県神戸市東灘区深江北町4丁目14番34号 |
| (22)出願日  | 平成4年(1992)2月15日 | (72)発明者 | 山本 和彦<br>神戸市東灘区深江北町4丁目14番34号 三徳金属工業株式会社内          |
|          |                 | (72)発明者 | 三宅 裕一<br>神戸市東灘区深江北町4丁目14番34号 三徳金属工業株式会社内          |
|          |                 | (72)発明者 | 岡田 力<br>神戸市東灘区深江北町4丁目14番34号 三徳金属工業株式会社内           |
|          |                 | (74)代理人 | 弁理士 酒井 一 (外2名)                                    |

(54)【発明の名称】 永久磁石用合金鋳塊及びその製造法

(57)【要約】

【構成】 短軸方向0.1～50 $\mu$ m、長軸方向0.1～100 $\mu$ mの結晶粒径を有する結晶を90容量%以上含有する希土類金属-鉄-ボロン系永久磁石用合金鋳塊及びその製造方法。

【効果】 本発明の永久磁石用合金鋳塊は、特定結晶粒径を有する結晶を特定量含有し、また希土類金属-鉄-ボロン系組成であるので、粉碎性、焼結性に優れている。従って、磁石特性の極めて優れた永久磁石用原料として有用である。また本発明の製造方法では、特定の冷却速度及び特定の過冷度にて、均一性に優れた組成及び組織を有する永久磁石合金鋳塊を容易に得ることができる。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 短軸方向0.1～50 $\mu$ m、長軸方向0.1～100 $\mu$ mの結晶粒径を有する結晶を90容量%以上含有する希土類金属-鉄-ボロン系永久磁石用合金鑄塊。

【請求項2】 前記合金鑄塊の主相結晶粒内に、包晶核である粒径10 $\mu$ m未満の $\alpha$ -Fe及び/又は $\gamma$ -Feが微細分散されていることを特徴とする請求項1記載の永久磁石用合金鑄塊。

【請求項3】 希土類金属-鉄-ボロン系合金溶融物を凝固させて請求項1記載の永久磁石用合金鑄塊を製造するにあたり、該合金溶融物を冷却速度10～500℃/秒、過冷度10～500℃の冷却条件下で均一に凝固させることを特徴とする永久磁石用合金鑄塊の製造法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、磁石特性に優れた結晶組織を有する希土類金属-鉄-ボロン系永久磁石用合金鑄塊及びその製造法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】従来、永久磁石用合金鑄塊は、溶融した合金を金型に鑄造する金型鑄造法により製造されているのが一般的である。しかし該金型鑄造法により合金溶融物を凝固させる場合、合金溶融物の抜熱過程において、抜熱初期では鑄型伝熱律速であるが、凝固が進行すると、鑄型-凝固相間及び凝固相における伝熱が抜熱律速となり、金型冷却能を向上させても鑄塊内部と鑄型近傍の鑄塊では、冷却条件が異なり、特に鑄塊厚が厚いほどこのような現象が生じる。このように鑄塊の内部と表面付近での冷却条件の相違が大きい場合には、特に磁石組成における高残留磁束密度側の鑄造組織に、初晶 $\gamma$ -Feが多く存在し、このため鑄塊の中央部に粒径10～100 $\mu$ mの $\alpha$ -Feが残存し、同時に主相を取り巻く希土類金属に富んだ相の大きさも大きくなる。

【0003】一方、磁石製造工程における粉碎過程においては、通常鑄塊が数ミクロンまで微粉碎されるが、前記金型鑄造法で得られる鑄塊の場合には、粉碎が困難な粒径の大きい $\alpha$ -Fe及び希土類金属に富んだ大きい相を含有するので、粉碎後の粉末粒度分布が不均一となり、磁性の配向性及び焼結性に悪影響を及ぼし、最終的に得られる永久磁石の磁気特性が低下するという欠点がある。

【0004】また前記金型鑄造法により得られる鑄塊組織中に、短軸方向0.1～50 $\mu$ m、長軸方向0.1～100 $\mu$ mの結晶粒径を有する結晶が存在することが知られているが、該結晶の含有率は、僅かであって、磁石特性に良好な影響を及ぼすには至っていない。

【0005】更にまた、希土類金属元素、コバルト及び必要に応じて、鉄、銅、ジルコニウムを添加し、ルツボ中で溶解させた後、双ロール、単ロール、双ベルト等を

組み合わせたストリップキャストリング法等で0.01～5mmの厚さとなるように凝固させる希土類金属磁石用合金の製造法が提案されている。

【0006】該方法では、金型鑄造法に比して組成の均一な鑄塊が得られるが、原料成分が、希土類金属元素、コバルト及び必要に応じて、鉄、銅、ジルコニウムを組み合わせた成分であるために、前記ストリップキャストリング法による磁石性能の向上が十分に得られない等の問題がある。

## 【0007】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、永久磁石合金の特性に最も良い影響を与える結晶組織を有する永久磁石用合金鑄塊及びその製造法を提供することにある。

## 【0008】

【課題を解決するための手段】本発明によれば、短軸方向0.1～50 $\mu$ m、長軸方向0.1～100 $\mu$ mの結晶粒径を有する結晶を90容量%以上含有する希土類金属-鉄-ボロン系永久磁石用合金鑄塊又は該合金の主相結晶粒内に、包晶核である粒径10 $\mu$ m未満の $\alpha$ -Fe及び/又は $\gamma$ -Feが微細分散されてなる永久磁石用合金鑄塊が提供される。

【0009】また本発明によれば、希土類金属-鉄-ボロン系合金溶融物を凝固させて前記永久磁石用合金鑄塊を製造するにあたり、該合金溶融物を冷却速度10～500℃/秒、過冷度10～500℃の冷却条件下均一に凝固させることを特徴とする永久磁石用合金鑄塊の製造法が提供される。

【0010】以下本発明を更に詳細に説明する。

【0011】本発明の永久磁石用合金鑄塊は、短軸方向0.1～50 $\mu$ m、長軸方向0.1～100 $\mu$ mの結晶粒径を有する結晶を90容量%以上、好ましくは98容量%以上含有する希土類金属-鉄-ボロン系の合金鑄塊であって、特に、主相結晶粒内に包晶核として通常含有される $\alpha$ -Fe及び/又は $\gamma$ -Feが全く含有されていないのが好ましく、また該 $\alpha$ -Fe及び/又は $\gamma$ -Feを含有する場合には、該 $\alpha$ -Fe及び/又は $\gamma$ -Feの粒径が10 $\mu$ m未満であり、且つ微細分散されているのが好ましい。この際前記特定の結晶粒径を有する結晶の含有割合が、90容量%未満の場合には、得られる合金鑄塊に優れた磁石特性を付与できない。また短軸方向及び長軸方向の長さが前記範囲外である場合、若しくは該 $\alpha$ -Fe及び/又は $\gamma$ -Feの粒径が10 $\mu$ m以上であり、且つ微細分散されていない場合には、永久磁石製造工程における粉碎の際に、粒度分布が不均一になるので好ましくない。また永久磁石用合金鑄塊の厚さは、0.05～15mmの範囲であるのが好ましい。厚さが15mmを超える場合には、所望の結晶組織とするための後述する製造法が困難となるので好ましくない。

【0012】本発明の永久磁石用合金鑄塊を形成する原

料成分は、希土類金属-鉄-ボロン系であれば特に限定されるものではなく、通常製造の際に不可避免的に含まれる他の不純物成分を含んでいても良い。また希土類金属は、単体でも混合物であっても良い。該希土類金属と、ボロンと、鉄との配合割合は、通常永久磁石用合金鑄塊の配合割合と同様で良く、好ましくは重量比で、25～40：0.5～2.0：残量であるのが好ましい。

【0013】本発明の製造方法では、前記永久磁石用合金鑄塊を得るために、希土類金属-鉄-ボロン系合金溶融物を、冷却速度10～500℃/秒、好ましくは100～500℃/秒、過冷度10～500℃、好ましくは200～500℃の冷却条件下で均一に凝固させることを特徴とする。

【0014】この際過冷度とは、(合金の融点) - (合金溶融物の実際の温度) の値であって、冷却速度と相関関係を有する。冷却速度及び過冷度が前記必須範囲外の場合には、所望の組織を有する合金鑄塊が得られない。

【0015】本発明の製造方法を更に具体的に説明すると、例えば真空溶融法、高周波溶融法等により、好ましくはるつぼ等を用いて、不活性ガス雰囲気下、希土類金属-鉄-ボロン系合金を溶融物とした後、該溶融物を、例えば、単ロール、双ロール又は円板上等において、前記条件下、好ましくは連続的に凝固させる等のストリップキャスト法を用いた方法等により、所望の結晶組織を有する永久磁石用合金鑄塊を得ることができる。即ち、ストリップキャスト法等で凝固させる場合には、合金鑄塊の厚さを、好ましくは0.05～15mmの範囲となるように、鑄造温度及び注湯速度等を適宜選択し、前記条件下処理するのが最も容易な方法である。

【0016】本発明の永久磁石用合金鑄塊は、通常の粉碎、混合、微粉碎、磁場プレス及び焼結工程等により、永久磁石とすることができる。

【0017】

【発明の効果】本発明の永久磁石用合金鑄塊は、短軸方向0.1～50μm、長軸方向0.1～100μmの結晶粒径を有する結晶を特定量含有し、また希土類金属-鉄-ボロン系組成であるので、粉碎性、焼結性に優れている。従って、磁石特性の極めて優れた永久磁石用原料として有用である。また本発明の製造方法では、特定の冷却速度及び特定の過冷度にて、均一性に優れた組成及び組織を有する永久磁石合金鑄塊を容易に得ることができる。

【0018】

【実施例】以下本発明を実施例及び比較例により更に詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0019】

【実施例1】ネオジム14原子%、ボロン6原子%、鉄80原子%からなる各金属元素を配合した合金を、アルゴンガス雰囲気中で、アルミなるつぼを使用して高周波溶融法により溶融物とした。次いで、得られた溶融物の温度を1350℃に保持した後、図1に示す装置を用いて以下の方法に従って永久磁石用合金鑄塊を得た。得られた合金鑄塊を化学分析した結果を表1に示す。

【0020】図1は、単ロールを用いたストリップキャスト法により永久磁石用合金鑄塊を製造するための概略図であって、1は前記高周波溶融法により溶融した溶融物の入ったるつぼである。1350℃に保持された溶融物2を、タンディッシュ3上に連続的に流し込み、次いで約1m/sで回転するロール4上において、冷却速度500℃/秒、過冷度200℃の冷却条件となるように急冷凝固させ、ロール4の回転方向に連続的に溶融物2を落下させて、厚さ0.2～0.4mmの合金鑄塊5を製造した。

【0021】次に得られた永久磁石用合金鑄塊を、250～24メッシュに粉碎し、アルコール中において、更に3μm程度まで微粉碎した。次いで得られた微粉末を、150MPa、2400KA<sup>-1</sup>の条件下、磁場プレスした後、1040℃にて2時間焼結し、10×10×15mmの永久磁石を得た。得られた永久磁石の磁石特性を表2に示す。

【0022】

【比較例1】実施例1で製造した合金溶融物を、高周波溶融法により溶解し、金型鑄造法により厚さ25mmの永久磁石用合金鑄塊を得た。得られた合金鑄塊を実施例1と同様に分析し、更に永久磁石を製造した。合金鑄塊の分析結果を表1に、磁石特性を表2に示す。

【0023】

【比較例2】ネオジム11.6原子%、プラセオジム3.4原子%、ボロン6原子%、鉄79原子%からなる各金属元素を配合した合金を用いた以外は、実施例1と同様に永久磁石用合金鑄塊を製造し、得られた合金鑄塊を実施例1と同様に分析し、更に永久磁石を製造した。合金鑄塊の分析結果を表1に、磁石特性を表2に示す。

【0024】

【表1】

|      | 主相粒径 (平均) 標準偏差<br>(単位は $\mu\text{m}$ ) | $\alpha\text{-Fe}$ の粒径  | 希土類金属(R)に富む相                                     |
|------|--|-------------------------|--|
| 実施例1 | 短軸3~10 (7) 2<br>長軸10~80(70) 20         | 認められない                  | 主相を取り囲むように均一に分布                                  |
| 比較例1 | 短軸50~250(170) 50<br>長軸50~400(190) 60   | 数十 $\mu\text{m}$ のものが晶出 | 数十 $\mu\text{m}$ の $\alpha\text{-Fe}$ 、(R)相が多く分布 |
| 比較例2 | 短軸5~10 (7) 4<br>長軸50~100(30) 30        | 認められない                  | 均一に分布  |

【0025】

\* \* 【表2】

|                            | 実施例1 | 比較例1 | 比較例2 |
|----------------------------|------|------|------|
| Br (KG)                    | 12.9 | 11.8 | 12.5 |
| iHc (KOe)                  | 15.0 | 14.9 | 15.5 |
| (BH) <sub>max</sub> (MG0e) | 41.0 | 35.7 | 39.0 |

【図面の簡単な説明】

※法により永久磁石用合金鋳塊を製造する際の概略図であ

【図1】図1は、実施例1で用いたストリップキャスト※る。

【図1】

